

Docket No.

16405US3/bt

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Hikaru OKAMOTO

GAU: 1745

SERIAL NO: 09/990,378

EXAMINER:

FILED: November 23, 2001

FOR: SOLID POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL AND METHOD FOR PRODUCING ELECTRODE THEREOF

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
WASHINGTON, D.C. 20231

RECEIVED  
JAN 18 2002  
TC 1700

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number [US App No], filed [US App Dt], is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

COUNTRY

JAPAN

APPLICATION NUMBER

2000-355722

MONTH/DAY/YEAR

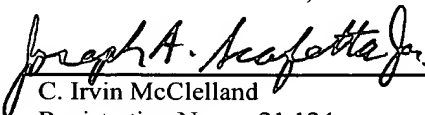
November 22, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and  
(B) Application Serial No.(s)
  - ☐ are submitted herewith
  - ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

  
C. Irvin McClelland

Registration No. 21,124

Joseph A. Scafetta, Jr.  
Registration No. 26,803



22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 10/98)



09/990,378 W 7453(米)  
216405 US-97-97-0

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年11月22日

出願番号

Application Number:

特願2000-355722

出願人

Applicant(s):

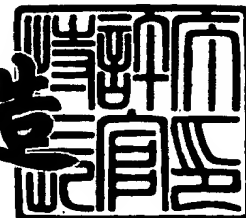
アイシン精機株式会社

RECEIVED  
JAN 18 2002  
TC 1700

2001年12月21日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3109759

【書類名】 特許願

【整理番号】 AK00-0455

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 4/88  
H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市朝日町 2 丁目 1 番地 アイシン精機株式会社  
社内

【氏名】 岡本 光

【特許出願人】

【識別番号】 0000000011

【氏名又は名称】 アイシン精機株式会社

【代表者】 豊田 幹司郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011176

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池及び電極、及びその電極の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 イオン交換能を有する固体高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜の一方側に配置されるアノード電極と、前記高分子電解質の他方側に配置されるカソード電極とから構成される固体高分子電解質型燃料電池において、前記カソード電極は、該電極の厚さ方向に、特性が異なった少なくとも 2 つ以上の第 1 ガス拡散層と第 2 ガス拡散層を貼り合わせて接合拡散層を形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池及び電極。

【請求項 2】 前記カソード電極の第 1 ガス拡散層と第 2 ガス拡散層との間に親水性の水溜め中間層を配設したことを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質型燃料電池及び電極。

【請求項 3】 前記カソード電極の第 1 ガス拡散層と第 2 ガス拡散層とは、前記電極の厚さ方向にガスの透過性、電気抵抗、あるいは撥水性の特性の何れか 1 つ以上をお互いに変えたことを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質型燃料電池及び電極。

【請求項 4】 前記カソード電極の第 1 ガス拡散層と第 2 ガス拡散層において、触媒層側の第 1 ガス拡散層はガス拡散性の小さい拡散層とし、セパレータ側の第 2 拡散層は前記第 1 ガス拡散層よりガス拡散性が大きい拡散層としたことを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質型燃料電池及び電極。

【請求項 5】 前記第 2 ガス拡散層を形成する工程と、密度が前記第 2 ガス拡散層より高くなるよう前記第 2 ガス拡散層を厚さ方向から圧縮して第 1 拡散層を形成する工程と、前記第 1 拡散層と第 2 拡散層とを熱により圧縮接合して得られる工程からなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池の電極の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子電解質型燃料電池、電極、及びその電極の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

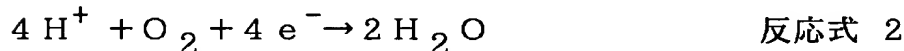
従来より、固体高分子型燃料電池は、プロトン導電性の固体高分子電解質膜をその構成部品として有することを特徴としており、水素等の燃料ガスと酸化ガスを電気化学的に反応させることによって、その際に生ずる起電力を得る装置である。

【0003】

燃料ガスとして水素ガスを、酸化ガスとして酸素を用いた際の電極反応は、アノード極側では、



なる反応が起こり、生成したプロトンは固体電解質膜の中を通り、カソード極で、



なる反応が起こり、両極間に最大で1.23Vの起電力が生ずる。

【0004】

その従来の固体高分子電解質型燃料電池の構成の概略図を図3に示す。上記電池反応をスムーズ且つ効率的に進めるために、図3のガス拡散電極1bは非常に重要な役割を担っている。

【0005】

燃料電池を発電させるためには、触媒面に燃料ガス及び反応ガスを触媒面まで供給する必要があるが、燃料電池のカソード極側1baでは、反応式2従い、触媒層で水が生成する。その生成した水は触媒層1dを覆い、酸化ガスの触媒層1dへの供給を妨げる。

【0006】

一方、アノード極側1bbでは、反応式1に従い、生成したプロトンは、水和し、水を引きつれて固体高分子電解質膜1a内をカソード極1ba側に移動するために、アノード極1bb側で水が不足し、電解質膜1aの乾燥が起こる。その

ため、アノード極 1 b b 側に供給する燃料ガスを通常加湿して供給されるが、過剰の加湿は、燃料ガスの触媒層 1 d への供給を妨げる。反応により生成する水及び加湿による水の妨害を防ぐために、通常、電極内に P T F E (ポリテトラフルオロエチレン) 等の撥水材 1 c を混合する技術が良く用いられる。

## 【 0 0 0 7 】

しかしながら、撥水材の多量の添加は、電極バルク及び表面の電気抵抗の増加や、ガス透過率の減少を引き起こす。また、電極の撥水性が強すぎると、逆に、電解質膜 1 a の加湿が困難となったり、燃料／酸化ガスの供給時に電解質膜 1 a に含水された水が持ち去られ、電解質膜 1 a のドライアップが起こる。

## 【 0 0 0 8 】

また、触媒を3次元的に利用し、触媒の利用効率を上げるために、電解質膜 1 a を溶媒に溶かした溶液を、触媒と共にガス拡散層に含浸する方法が良く知られているが、その際は、電極にプロトン導電性と同時に、親水性が付与される。また、ガス拡散電極の役割として、触媒面に燃料ガス及び反応ガスを触媒面まで均一に、且つ、容易に供給する必要がある。その為には、ガス拡散電極の空孔率を上げ、ガス透過率、拡散係数を増加させることが有効である。

## 【 0 0 0 9 】

しかしながら、過剰なガスの供給は、電解質膜 1 a を乾燥させ、プロトン導電性を減少させる。

## 【 0 0 1 0 】

また、図 3 に示す燃料電池セパレータ 1 c は、電流を取り出す目的と燃料ガス、酸化ガスは、電極方向に供給する目的で、山-谷の断面構造となっているのが普通である。ガスは、セパレータの谷の部分を通じて、電極方向に供給されるが、山の部分はガスの供給は行ってはいないので、セパレータ 1 c 面内近傍のガス濃度は不均一な濃度となっている。ガス拡散電極の役割として、谷の部分から供給されたガスを拡散させ、触媒層面内で、ガス濃度を均一にさせる機能を有する。その機能のために、ガス拡散性の大きい(多孔質の)特性の物が用いられるが、ガス拡散性の大きい(多孔質の)電極は、逆に、電解質膜 1 a から、水(水蒸気)を奪いやすく、電解質膜を乾燥させやすい。

【 0 0 1 1 】

以上のように、燃料電池のガス拡散層の特性として、親水性／撥水性の適度なバランスとガス透過性の適正化が必要である。

【 0 0 1 2 】

上記構造を実現させる為の従来技術として、カーボンブラック及び P T F E を適当な分散媒を用いてペースト化し、それをシート状に成形し、焼成して電極にしたもの、それを別途準備したカーボンペーパー又はカーボンクロスに含浸させ、焼成して電極にしたものが通常良く用いられる。

【 0 0 1 3 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記電極内に形成される構造は、カーボンブラック、P T F E、分散媒等の種類、組成、混合方法等で変化する複雑な凝集／分散機構によって決定される。そのため、理想的に、もしくは、設計者の意図通りに電極内の構造を制御出来るような状況にはこれまではなかった。

【 0 0 1 4 】

本発明は、上記課題を解決したもので、固体高分子電解質型燃料電池用のカソード極側として、例えば、触媒層側にガス拡散性が小さい拡散層、セパレータ側にガス拡散性が大きい拡散層を張り合わせるにより、電解質膜を乾燥させることなく、触媒層面内にガスを均一に供給することが可能となる。

【 0 0 1 5 】

また、燃料電池の電極は、使用される条件により仕様を変更する必要がある。また固体高分子電解質燃料電池の用途として、自動車用と据え置き（家庭）用の2つが検討されている。これらはそれぞれの用途によって、用いられるセルの構造が異なっており、それぞれに要求される電極の厚さも異なっている。本発明は、電極の厚さの要求に対して、容易に対応が可能であり、安価な固体高分子電解質型燃料電池、電極、及びその製造方法を提供する。

【 0 0 1 6 】

【課題を解決するための手段】

上記技術的課題を解決するためになされた請求項 1 の発明は、イオン交換能を

有する固体高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜の一方側に配置されるアノード電極と、前記高分子電解質の他方側に配置されるカソード電極とから構成される固体高分子電解質型燃料電池において、前記カソード電極は、該電極の厚さ方向に、特性が異なった少なくとも2つ以上の第1ガス拡散層と第2ガス拡散層を貼り合わせて接合拡散層を形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池及び電極である。

【0017】

請求項1の発明により、その張り合わせの組み合わせの違いにより、それぞれの要求に答えた仕様の電極とすることが可能である。電極の厚さの要求に対して、容易に対応が可能である。

【0018】

上記技術的課題を解決するためになされた請求項2の発明は、前記カソード電極の第1ガス拡散層と第2ガス拡散層との間に親水性の水溜め中間層を配設したことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池及び電極である。

【0019】

請求項2の発明により、カーボンブラック等の親水材料で形成される水溜め中間層30は、カソード触媒上で反応により生成した水を吸い上げ、保持することによりフラディングを防止する。

【0020】

一方、乾燥した酸化ガスは水溜め中間層30まで到達し、一部は生成水を電極外に運び去ることに利用され、残りは、水溜め中間層30を介して、加湿され、電解質膜方向に供給されるため、加湿量を少なくすることが可能となるといった効果が得られる。

【0021】

上記技術的課題を解決するためになされた請求項3の発明は、前記カソード電極の第1ガス拡散層と第2ガス拡散層とは、前記電極の厚さ方向にガスの透過性、電気抵抗、あるいは撥水性の特性の何れか1つ以上をお互いに変えたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池及び電極である。

【0022】



請求項 3 の発明により、請求項 2 の効果に加えて、触媒層で生成した水が拡散層の性質の違いにより、外側に排出されやすくなり、フラッディング現象が緩和される。電解質の乾燥が防止され、セルを高温にした場合や、加湿量を減少させた場合のドライアップ現象が緩和されるといった効果が得られる。

【 0 0 2 3 】

上記技術的課題を解決するためになされた請求項 4 の発明は、前記カソード電極の第 1 ガス拡散層と第 2 ガス拡散層において、触媒層側の第 1 ガス拡散層はガス拡散性の小さい拡散層とし、セパレータ側の第 2 拡散層は前記第 1 ガス拡散層よりガス拡散性が大きい拡散層としたことを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質型燃料電池及び電極である。

【 0 0 2 4 】

請求項 4 の発明により、電解質膜を乾燥させること無く、触媒層面内にガスを均一に供給することが可能となる。

【 0 0 2 5 】

上記技術的課題を解決するためになされた請求項 5 の発明は、前記第 2 ガス拡散層を形成する工程と、密度が前記第 2 ガス拡散層より高くなるよう前記第 2 ガス拡散層を厚さ方向から圧縮して第 1 拡散層を形成する工程と、前記第 1 拡散層と第 2 拡散層とを熱により圧縮接合して得られる工程からなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池の電極の製造方法である。

【 0 0 2 6 】

請求項 5 の発明により、上記請求項 1 ～請求項 4 の効果を備えた固体高分子電解質型燃料電池の電極を得る場合、簡単で安価な製造方法が得られるといった効果がある。

【 0 0 2 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施について図面を参照して説明する。前記したように、固体高分子型燃料電池のカソード電極の求められる性能として、触媒層のフラッディングが起こり難いこと、外部からの燃料ガスへの加湿が不必要、または、少ないことが挙げられる。

## 【 0 0 2 8 】

本発明の電極のカソード電極構造を図 2 に示す。本発明のカソード電極は第 1 ガス拡散層 1 0 と第 2 ガス拡散層 2 0 からなりたった多層構造となっている。ここでカソード電極（ガス拡散層）1 0 0 の第 1 ガス拡散層 1 0 と第 2 ガス拡散層 2 0 において、触媒層 3 0 側の第 1 ガス拡散層 1 0 はガス拡散性の小さい拡散層とし、セパレータ側の第 2 拡散層 2 0 は前記第 1 ガス拡散層 1 0 よりガス拡散性が大きい拡散層としている。

## 【 0 0 2 9 】

また、異なったガス透過率を有する第 1 拡散層 1 0 は、緻密層からなりたっており、第 2 拡散層 2 0 は、第 1 拡散層 1 0 より孔が大きい多孔質層 2 0 からなりたっている。

## 【 0 0 3 0 】

この第 1 拡散層 1 0 の製造方法は、密度が前記第 2 ガス拡散層 2 0 より高くなるよう前記第 2 ガス拡散層 2 0 を厚さ方向から圧縮して形成される。

## 【 0 0 3 1 】

またこの第 1 拡散層 1 0 と第 2 拡散層 2 0 との間には、水溜めの中間層 3 0 を有している。カーボンブラック等の親水材料で形成される水溜め中間層 3 0 は、カソード触媒上で反応により生成した水を吸い上げ、保持することによりフラッディングを防止する。

## 【 0 0 3 2 】

一方、乾燥した酸化ガスは水溜め中間層 3 0 まで到達し、一部は生成水を電極外に運び去ることに利用され、残りは、水溜め中間層 3 0 を介して、加湿され、電解質膜方向に供給されるため、加湿量を少なくすることが可能となる。

## 【 0 0 3 3 】

またこのカソード電極 1 0 0 の第 1 ガス拡散層 1 0 と第 2 ガス拡散層 2 0 とは、前記電極の厚さ方向に上記のガスの透過性の他に、電気抵抗、あるいは撥水性の特性の何れか 1 つ以上をお互いに変えてもよい。

## 【 0 0 3 4 】

本発明は、2 枚以上のガス拡散層を、後工程で張り合わせる事により、電極の

厚さ方向の構造（厚さ、性質等）を意図的に、且つ、厳密に制御することが可能となった。また、張り合わせするガス拡散層界面に、親水材／撥水材等の異種材を挿入する事により、電極の厚さ方向の中間部だけの性能を変える事が可能となった。

【 0 0 3 5 】

本発明のごとく、電極の厚さ方向に、2枚以上の特性が同じ又は異なった電極シートの貼り合わせ技術を用いる事により、以下のような効果が期待できる。

【 0 0 3 6 】

1. 電極設計の自由度が飛躍的に向上する。

【 0 0 3 7 】

2. 張り合わせるガス拡散層の組み合わせで、電解質膜、セパレータ、運転条件等の仕様に容易に答える事が可能である。その為、各自仕様に応じた種類のガス拡散層を準備する必要が無くなる。例えば、拡散層の厚さの変更を求められた場合、張り合わせ枚数の変更で容易に対応が可能である。

【 0 0 3 8 】

3. 2枚以上の特性が同じ又は異なったサイズの異なった電極シートを部分的に貼り合わせる事により、電極断面の形状を変えたり、面内方向で部分的な性質を変える事も可能である。

【 0 0 3 9 】

また、第1ガス拡散層と第2ガス拡散層とは電気抵抗を変えてもよい。その場合、集電性の向上といった効果が得られる。

【 0 0 4 0 】

A. 電極の作製

（実施例）

図1に示す電極を実現するために、以下の手順で実際に電極を作製した。張り合わせの元となる、ガス拡散層は、特開2000-136493号公報に記載される湿式の抄紙法に基づき作製した。

【 0 0 4 1 】

1. カーボンファイバー（ $\phi 12.5 \mu\text{m}$ ,  $l = 3 \text{ mm}$ ）と木材パルプを6：4にな

るように秤量し、適当な抄紙試薬を用い、水に分散させペースト化させる。この際、木材パルプは、ガス拡散電極の薄化を実現するための抄紙バインダーとして、添加を行う。

【 0 0 4 2 】

2. これをタッピ抄（手すき）により、 $50 \text{ g/m}^2$ 、 $t=0.2$  のカーボンファイバー/パルプの混合紙を作製する。

【 0 0 4 3 】

3. CB（カーボンブラック）とエチレングリコールとイソプロピルアルコールを混合してペースト化したものを、スクリーン印刷機により、上記カーボンファイバー/パルプの混合紙に両面から内部まで均一に含浸した後、大気中、 $85^{\circ}\text{C}$  でエチレングリコールとイソプロピルアルコールを除去し、乾燥させる。

【 0 0 4 4 】

4. 次に、上記作製したCBを含浸させたカーボンファイバー/パルプの混合紙を $15 \text{ wt}\%$  PTFEデスパーション溶液、例えば、ポリフロン D1（ダイキン工業株式会社製）に浸漬することでPTFEを含浸させる。その後、大気中で $390^{\circ}\text{C}$  で1時間焼成することで、PTFEを溶融し、定着させる。この際、抄紙バインダーとして用いた、木材パルプ成分は灰化・焼失し、その跡の空孔は、ガス通気孔として機能する。

【 0 0 4 5 】

このように作製された、ガス拡散層を第2ガス拡散層20とする。

【 0 0 4 6 】

5. 次に、ガスの透過率をコントロールする為に、第2ガス拡散層20をプレス機により圧縮し、密度を向上させた。ガス拡散層10を冷間で $200 \text{ kgf/cm}^2$  で圧縮したものを第2ガス拡散層20と呼ぶ。

【 0 0 4 7 】

6. 図1に示したように、電極の中間に親水層を形成するために、ガス拡散層20の片面からCB層を含浸する。

【 0 0 4 8 】

7. これに、拡散層10を、 $80 \text{ kgf/cm}^2$ 、 $160^{\circ}\text{C}$  で1.5分ホット

プレスで圧縮接合した。これが本発明の接合された接合拡散層 1 0 0 である。

【 0 0 4 9 】

< 比較例 >

1. 本発明の実施の電極の作製例と同様にカーボンファイバー( $\phi 12.5 \mu\text{m}$ 、 $l = 3 \text{ mm}$ )と木材パルプを 6 : 4 になるように秤量し、適当な抄紙試薬を用い、水に分散させペースト化させる。

【 0 0 5 0 】

2. これをタッピ抄により、 $50 \text{ g/m}^2$ 、 $t = 0.4$  のカーボンファイバー/パルプの混合紙を作製する。

【 0 0 5 1 】

3. CB とエチレングリコールとイソプロピルアルコールを混合してペースト化したものを、スクリーン印刷機により、上記カーボンファイバー/パルプの混合紙に両面から内部まで均一に含浸した後、大気中、 $85^\circ \text{C}$  でエチレングリコールとイソプロピルアルコールを除去し、乾燥させる。

【 0 0 5 2 】

4. 次に、上記作製したCBを含浸させたカーボンファイバー/パルプの混合紙を 15 wt % PTFE デスパージョン溶液、例えば、ポリフロン D1 (ダイキン工業株式会社製) に浸漬することで PTFE を含浸させる。その後、大気中で  $390^\circ \text{C}$  で 1 時間焼成することで、PTFE を溶融し、定着させる。

【 0 0 5 3 】

5. プレス機により冷間で圧縮し、接合拡散層 1 0 0 と同一の厚さにしたものが比較拡散層である。

【 0 0 5 4 】

< 電解質膜-電極接合体の作製 >

本発明により作製した電極の燃料電池特性を調べるために以下の手順で、電解質膜-電極接合体を作製した。

【 0 0 5 5 】

1. 白金担持カーボンと高分子電解質膜溶液 (商品名: A c i p l e x 溶液、旭化成工業株式会社製) と水とイソプロピルアルコールを 1 : 15 : 2 : 2 の重量

比で混合し、ペーストを作製する。

【 0 0 5 6 】

2. 接合拡散層 1 0 0 の第 2 ガス拡散層 2 0 側の面及び比較拡散層の片面に上記触媒ペーストを 3 0 0 m m 塗布する。その後、真空中、8 0 ° C でペーストを乾燥する。

【 0 0 5 7 】

3. 触媒を塗布した、接合拡散層 1 0 0 及び比較拡散層  $\phi$  3 5 . 7 ( S = 1 0 c m 2 ) にそれぞれ 1 枚及び 3 枚切断する。

【 0 0 5 8 】

4. 固体高分子電解質膜（商品名：Nafion 1 1 2、デュポン製）と上記切断した電極をホットプレスにより接合し（1 6 0 ° C、4 0 k g f / c m 2、1 . 5 m i n 保持）、電解質膜-電極接合体を作製する。

【 0 0 5 9 】

電極の組み合わせとして、

アノード/カソード = 比較拡散層 / 接合拡散層

アノード/カソード = 比較拡散層 / 比較拡散層

の 2 種類の電解質膜-電極接合体を作製し、カソードに本発明を用いた効果を確認した。

【 0 0 6 0 】

B. 特性評価

表 1 に各電極の厚さ、ガス通気度、バルクの電気抵抗の結果が示してある。

【 0 0 6 1 】

その結果、接合拡散層、比較電極層ともに接合後の全体としての（厚さ、ガス通気度、バルクの電気抵抗）の特性はほとんど変わらないことがわかった。

【 0 0 6 2 】

【表1】

表 1. 各種ガス拡散層の特性比較

	拡散層 1	拡散層 2	接合拡散層	比較拡散層
厚さ [mm] @20kgf/cm <sup>2</sup> 加重	0.15	0.1	0.26	0.26
N <sub>2</sub> ガスの透過係数 [μm(Pa·s) <sup>-1</sup> ]	450	35	32	30
電気抵抗 [mΩ·cm <sup>2</sup> ] @20kgf/cm <sup>2</sup> 加重	18	8	24	23

次に、カソード極側に接合拡散層または比較拡散層を用いて、実際に燃料電池

の運転を行い、その特性の違いを調べた。燃料ガスとして純水素、酸化ガスとして空気を用いた。ガスの加湿は、それぞれのガスを、バブラーと呼ばれる温度を制御された水の中を通じることで行い、その温度における飽和蒸気分がセル内に導入されることになる。今回、カソード側のバブラー温度を変化させ、各拡散層を用いた電極の電位-電流（V-I）特性、セル抵抗を測定した。

【 0 0 6 3 】

その燃料電池の運転条件として、

ガス圧力 : 純水素/空気 = 2 atm / 2 atm

ストイキ比 : 純水素/空気 = 1.2 / 4

セル温度 : 80° C

ポット温度 : 純水素/空気 = 90° C / (a) 50° C, (b) 80° C, (c) 30° Cとした。

【 0 0 6 4 】



【表 2】

表 2. 各種ガス拡散層のもを用いた場合のセル抵抗の比較

	接合拡散層 [ $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ]	比較拡散層 [ $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ]
(a) バブラー温度 = $50^\circ\text{C}$	142	141
(b) バブラー温度 = $80^\circ\text{C}$	139	137
(c) バブラー温度 = $30^\circ\text{C}$	144	233

表 2 からわかるように、カソード側に、接合拡散層もしくは比較拡散層を用いた場合、耐フラッディング性、耐ドライアップ性といった電池特性の違いを表し

ている。

【 0 0 6 5 】

図 2 は本発明の実施例と比較例の空気バブラー温度を変えた場合の V - I 特性を示したものである。図 2 - ( a ) には、空気のバブラー温度を 5 0 ° C にした場合の、V - I 特性が示してある。カソード側に、接合拡散層を場合も、比較拡散層を用いた場合も共にほぼ同一の V - I 特性を示した。

【 0 0 6 6 】

図 2 - ( b ) には、空気のバブラー温度を 8 0 ° C にし、図 2 - ( a ) の場合と比較して、カソード側の加湿量を増やした場合の V - I 特性を示した。接合拡散層を用いた場合、バブラー温度が 5 0 ° C の場合とほとんど変わらない特性を示したが、比較拡散層を用いた場合、1 A / c m <sup>2</sup> 以上の電流密度領域で、急激に出力が低下する減少が見られた。これは、カソード側の加湿量の増加により、比較拡散層を用いた場合は、電極の生成水処理能力の限界をきたし、触媒層のフラッディングが起こったことによるものと考えられる。

【 0 0 6 7 】

図 2 - ( c ) には、空気のバブラー温度を 3 0 ° C にし、カソード側の加湿量を弱に減少させた場合の V - I 特性を示した。○は接合拡散層、▼は比較拡散層を表す。接合拡散層を用いた場合、バブラー温度が 5 0 ° C の場合とほとんど変わらない特性を示したが、比較拡散層を用いた場合、電流密度の増加に伴う出力の低下の割合が大きいことがわかった。これは、カソード側の加湿量を減少させたために、高分子電解質膜のドライアップ現象が起こる事によると考えられる。このことは、表 2 に示したように、比較拡散層を用いた場合、燃料電池の運転時における、セル抵抗が大きくなっている事からも確認できる。

【 0 0 6 8 】

一方、接合拡散層を用いた場合、中間水溜め層の効果で、供給空気が加湿・供給されるため、高分子電解質膜のドライアップが起こらず、大きな出力低下が起こらなかったと考えられる。このことは表 2 の接合拡散層を用いた場合はセル抵抗がほとんど変わっていないことから確認できる。

【 0 0 6 9 】

このように、本発明の張り合わせによる電極構造の利点として以下の様なことが考えられる。ガス拡散層の役割として、触媒層で生成した水をスムーズに排出させると同時に、電解質を乾燥させないように保湿する役割がある。そこで、触媒層側に撥水性を有した拡散層、セパレータ側に親水性を有した拡散層を張り合わせるにより、

1. 触媒層で生成した水が拡散層の性質の違いにより、外側に排出されやすくなり、フラッディング現象が緩和される。

【 0 0 7 0 】

2. 電解質の乾燥が防止され、セルを高温にした場合や、加湿量を減少させた場合のドライアップ現象が緩和される。

【 0 0 7 1 】

また、触媒層側にガス拡散性が小さい拡散層、セパレータ側にガス拡散性が大きい拡散層を張り合わせるにより、電解質膜を乾燥させること無く、触媒層面内にガスを均一に供給することが可能となる。

【 0 0 7 2 】

さらに貼り合わせをする拡散層の界面に、異質な物質を挿入又は塗布することにより、異なった機能を持たせることが可能である。例えば、金属メッシュ等を挿入することにより、電極の集電効果の向上が期待できる。

【 0 0 7 3 】

燃料電池の電極は、使用される条件により仕様を変更する必要がある。現在、固体高分子電解質燃料電池の用途として、自動車用と据え置き（家庭）用の2つが大きく考えられている。自動車用の場合、燃料電池は、加圧下で、高電流領域で使用されるため、フラッディング現象が起こりやすい。そのため、電極は、撥水性を向上させた電極の仕様に設定される傾向にある。一方、据え置き（家庭）用の場合、常圧下で通常用いられるため、電解質膜のドライアップが起こりやすい。そのため、据え置き（家庭）用の電極は自動車用よりも、やや撥水性を落とした仕様に設定されるのが普通である。また、アノード側、カソード側の電極の機能が異なるため、それぞれに応じた仕様の電極を準備する必要がある。

【 0 0 7 4 】

本発明のように、張り合わせ構造の電極にした場合、異なった仕様の拡散層を準備し、その張り合わせの組み合わせの違いにより、それぞれの要求に答えた仕様の電極とすることが可能である。またそれぞれの用途によって、用いられるセルの構造が異なっており、それぞれに要求される電極の厚さも異なっている。張り合わせ構造の電極にした場合、電極の厚さの要求に対して、容易に対応が可能である。

【 0 0 7 5 】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明は、イオン交換能を有する固体高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜の一方側に配置されるアノード電極と、前記高分子電解質の他方側に配置されるカソード電極とから構成される固体高分子電解質型燃料電池において、前記カソード電極は、該電極の厚さ方向に、特性が異なった少なくとも2つ以上の第1ガス拡散層と第2ガス拡散層を貼り合わせて接合拡散層を形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池及び電極であるので、その張り合わせの組み合わせの違いにより、それぞれの要求に答えた仕様の電極とすることが可能である。また電極の厚さの要求に対しても、容易に対応が可能である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施例のカソード電極の断面図

【図 2】

本発明実施例の燃料電池の接合拡散層と比較拡散層の評価結果を表すグラフ

【図 3】

固体高分子電解質燃料電池の断面図

【符号の説明】

- 1 a …固体高分子電解質膜
- 1 b …ガス拡散電極（カソード電極 1 b a、アノード電極 1 b b）
- 1 c …セパレータ
- 1 d …触媒層

1 b b … アノード電極

1 b a … カソード電極

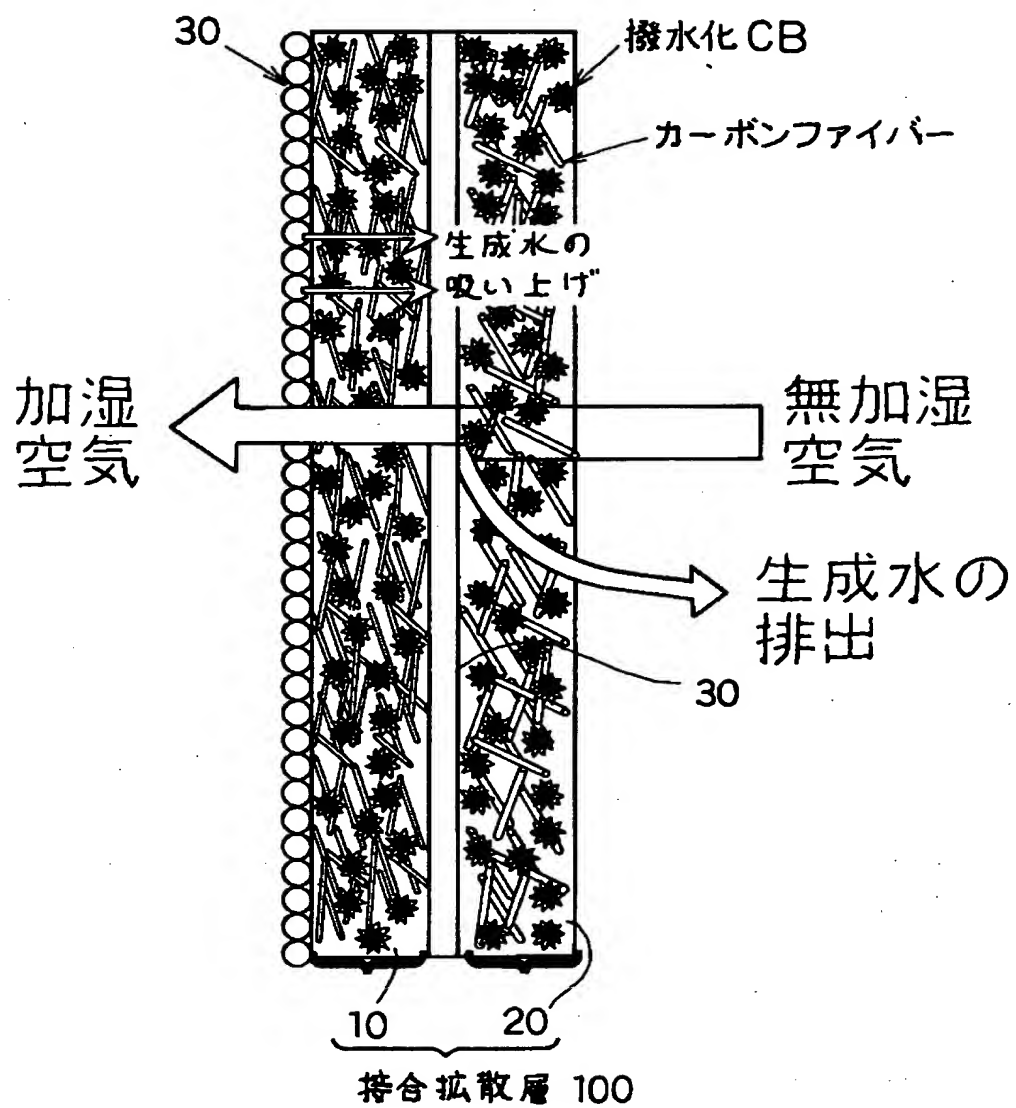
1 0 … 第1ガス拡散層

2 0 … 第2ガス拡散層

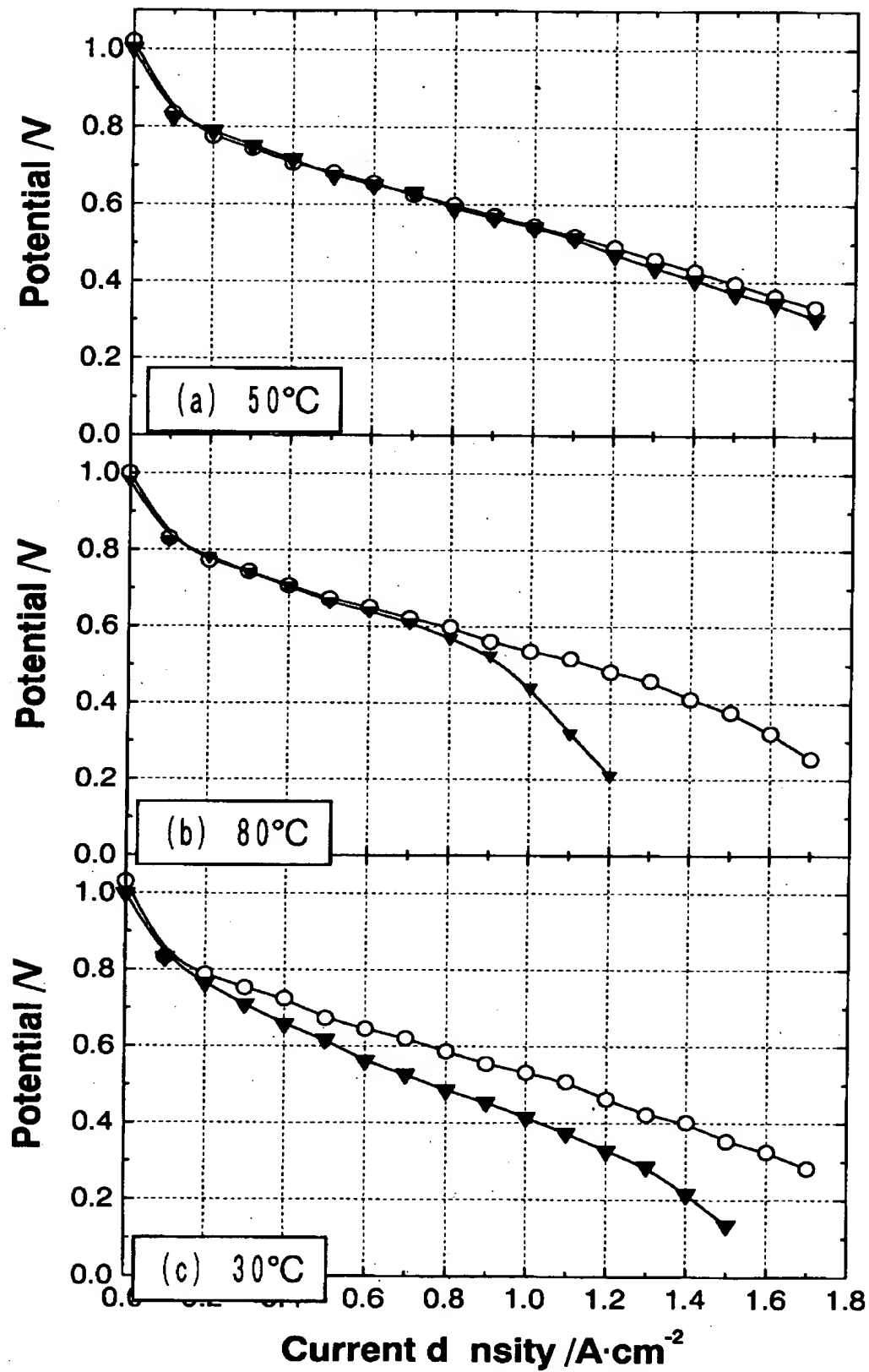
1 0 0 … 接合拡散層（カソード電極）

【書類名】 図面

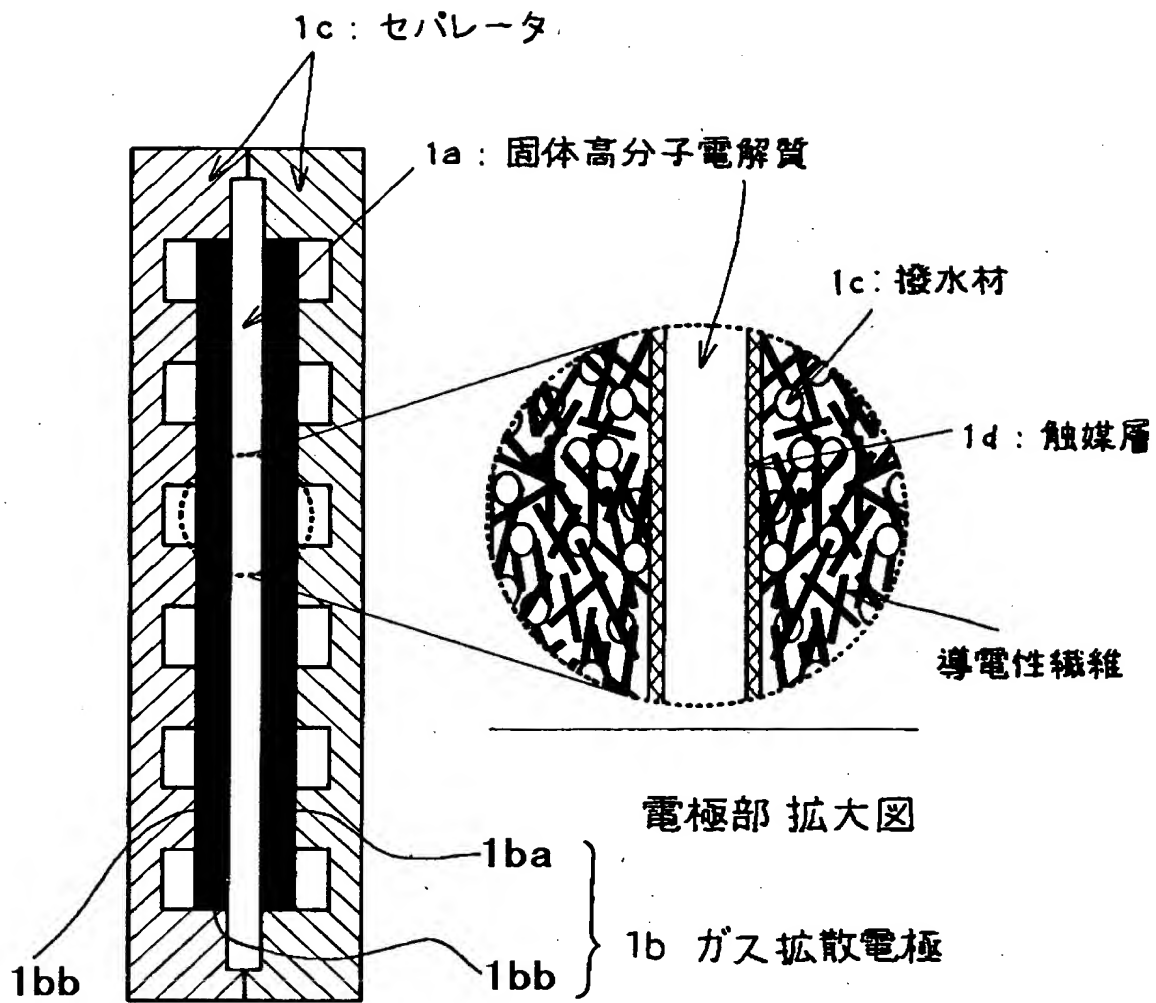
【図 1】



【図2】



【図3】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 張り合わせの組み合わせの違いにより、それぞれの要求に答えた仕様の電極とすることが可能である。電極の厚さの要求に対して、容易に対応が可能である固体高分子電解質燃料電池の提供。

【解決手段】 イオン交換能を有する固体高分子電解質膜 1 a と、前記高分子電解質膜の一方側に配置されるアノード電極 1 b b と、前記高分子電解質の他方側に配置されるカソード電極 1 b a とから構成される固体高分子電解質型燃料電池において、前記カソード電極 1 b a は、該電極の厚さ方向に、特性が異なった少なくとも 2 つ以上の第 1 ガス拡散層 1 0 と第 2 ガス拡散層 2 0 を貼り合わせて接合拡散層を形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池及び電極。

【選択図】 図 1

特 2 0 0 0 - 3 5 5 7 2 2

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 0 - 3 5 5 7 2 2
受付番号	5 0 0 0 1 5 0 5 3 5 3
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 2 年 1 1 月 2 4 日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成12年11月22日
-------	-------------

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0000000011]

1. 変更年月日	1990年 8月 8日
[変更理由]	新規登録
住 所	愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地
氏 名	アイシン精機株式会社